

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-302506

(43)Date of publication of application : 02.11.1999

(51)Int.Cl. C08L 63/00  
C08K 3/36  
H01L 23/29  
H01L 23/31

(21)Application number : 10-122805

(71)Applicant : TATSUMORI:KK  
SHIN ETSU CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 16.04.1998

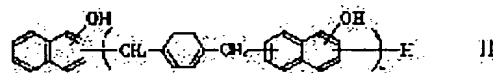
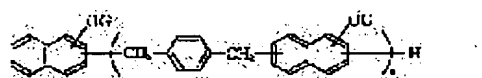
(72)Inventor : HIRANO TATSURO  
SUZUKI NOBUKAZU  
SHIOBARA TOSHIO  
AOKI TAKAYUKI  
OSADA MASAKAZU

## (54) EPOXY RESIN COMPOSITION FOR SEALING SEMICONDUCTOR AND SEMICONDUCTOR DEVICE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject composition including a highly packed inorganic filler, having readily controlled expansion coefficient and providing a hardened product having high thermal conductivity, low water absorption and high quality by including an epoxy resin, a hardener and an inorganic filler including a spherical cristobalite.

SOLUTION: This epoxy resin composition comprises (A) an epoxy resin [e.g. a resin of formula I [G is glycidyl; (n) is 1-10]], (B) a hardener [e.g. a resin of formula II [(n) is 0-10]] and (C) inorganic fillers compounding 1-90 wt.% spherical cristobalite obtained by forming a spherical fused silica having 0.3-50 μm average particle diameter and ≤150 μm maximum particle diameter into the cristobalite. The proportion of the used components A to B in the composition is preferably regulated so that the amount of the phenolic hydroxy group may be 0.5-1.6 mol per mol of the epoxy group, and the total amount of the used component C is preferably 300-1,200 pts.wt. based on 100 pts.wt. total of the components A and B.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 25.11.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 1 1 - 3 0 2 5 0 6

(43) 公開日 平成 11 年 (1999) 11 月 2 日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I
C 0 8 L 63/00		C 0 8 L 63/00 C
C 0 8 K 3/36		C 0 8 K 3/36
H 0 1 L 23/29		H 0 1 L 23/30 R
23/31		

審査請求 未請求 請求項の数 4

F D

(全 1 1 頁)

(21) 出願番号 特願平 10-122805

(22) 出願日 平成 10 年 (1998) 4 月 16 日

(71) 出願人 591138038

株式会社龍森

東京都港区芝公園 2 丁目 9 番 3 号

(71) 出願人 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目 6 番 1 号

(72) 発明者 平野 達郎

福島県郡山市田村町上行合字南川田 50 株式会社龍森郡山工場内

(72) 発明者 鈴木 伸和

福島県郡山市田村町上行合字南川田 50 株式会社龍森郡山工場内

(74) 代理人 弁理士 小島 隆司 (外 1 名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 半導体封止用エポキシ樹脂組成物及び半導体装置

(57) 【要約】

【解決手段】 エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填剤を必須成分とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物において、無機質充填剤として球状クリストバライトを充填剤全体の 1 ～ 9 0 重量 % 配合してなることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【効果】 本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、無機質充填剤として球状クリストバライトを特定量配合することにより、無機質充填剤を高充填化し得、かつ膨張係数の制御を簡単に行うこともでき、高熱伝導化及び低吸水性で高品質の硬化物を与える。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填剤を必須成分とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物において、無機質充填剤として球状クリストバライトを充填剤全体の 1～90 重量%配合してなることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項 2】 球状クリストバライトが、平均粒径 0.3～50  $\mu\text{m}$  であつ最大粒径 150  $\mu\text{m}$  以下の球状熔融シリカのクリストバライト化合物である請求項 1 記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項 3】 無機質充填剤として、球状クリストバライトと球状熔融シリカとを併用してなる請求項 1 又は 2 記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】 請求項 1、2 又は 3 記載の半導体封止用エポキシ樹脂組成物の硬化物で封止してなる半導体装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、無機質充填剤を高充填し得、かつ膨張係数の制御を簡単に行うことができ、高熱伝導性及び低吸水性の硬化物を与え、最先端の薄型パッケージ用封止剤等としても好適に使用することができる半導体封止用エポキシ樹脂組成物及びこの組成物の硬化物で封止された半導体装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】最近の薄型パッケージ用封止剤としてのエポキシ樹脂組成物においては、球状の熔融シリカを高充填化することで吸水量を低減させ、基板にパッケージをハンダづけする際のクラックを防止している。しかし、このように熔融シリカを高充填すると、膨張係数が非常に小さくなり、銅をリードフレーム材に使用した場合、リードフレームの膨張係数とエポキシ樹脂組成物の膨張係数とが大きくかけ離れてしまい、温度サイクルやリフロー時のストレスにより容易にクラックが入ってしまうという問題が生じる。

【0003】このような問題の解決策として、熔融シリカに膨張係数の大きな無機質充填剤を混合することでエポキシ樹脂組成物の膨張係数を調整しようとする試みが古くから行われている。例えばエポキシ樹脂組成物中に、無機質充填剤として熔融シリカに結晶シリカを混合したものを配合することは数多くの特許に記載されている。

【0004】しかしながら、これらの特許に使用されている結晶シリカは、破砕状のもののみであることから、最近の球状熔融シリカを高充填した組成物のレベルまで結晶シリカを導入することができず、そのため吸水率を目標レベルまで低下させることができないという欠点があった。更に、結晶シリカは球状のものを工業的に製造することができないため、球状結晶シリカの入手が非常

に困難であり、かつ入手したとしても、天然品であつて河床に長年かかつて摩砕されてきたものであることから、純度的にも最先端デバイスの封止用に使用することは難しく、かつ高充填に最適な粒度分布を作ることとは不可能であつた。

【0005】本発明は、上記問題点を解決するためになされたもので、無機質充填剤の高充填化が可能であり、かつ膨張係数の制御を簡単に行うことができ、高熱伝導性及び低吸水性の硬化物を与える半導体封止用エポキシ樹脂組成物及びこの組成物の硬化物で封止された半導体装置を提供することを目的とする。

## 【0006】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本発明者は、上記目的を達成するため鋭意検討を重ねた結果、エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填剤を必須成分とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物において、無機質充填剤として球状クリストバライトを充填剤全体の 1～90 重量%配合することにより、無機質充填剤を高充填し得る上、膨張係数の制御を簡単に行うことができ、高熱伝導性及び低吸水性の硬化物を与える半導体封止用エポキシ樹脂組成物が得られることを見出した。

【0007】この場合、本発明者は、最適な粒度に調整された球状熔融シリカをクリストバライト化することで、球状熔融シリカがその形状及び粒度分布を維持したまま熔融状態からクリストバライトに結晶化し得、粒度分布と形状を変えずに高充填化、高熱伝導化及び膨張係数の制御が可能な球状クリストバライトを得ることができ、更にこのようにして得られる球状クリストバライトをエポキシ樹脂組成物の充填剤として特定割合で配合した場合、フィラーの高充填化が可能で、高熱伝導化し得るばかりか、膨張係数を自由に調整して低吸水性化できることを知見し、本発明をなすに至ったものである。

【0008】従つて、本発明は、エポキシ樹脂、硬化剤及び無機質充填剤を必須成分とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物において、無機質充填剤として球状クリストバライトを充填剤全体の 1～90 重量%配合してなることを特徴とする半導体封止用エポキシ樹脂組成物及びこの半導体封止用エポキシ樹脂組成物の硬化物で封止された半導体装置を提供する。

【0009】以下、本発明について詳細に説明すると、本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤、無機質充填剤を必須成分としてなるものである。

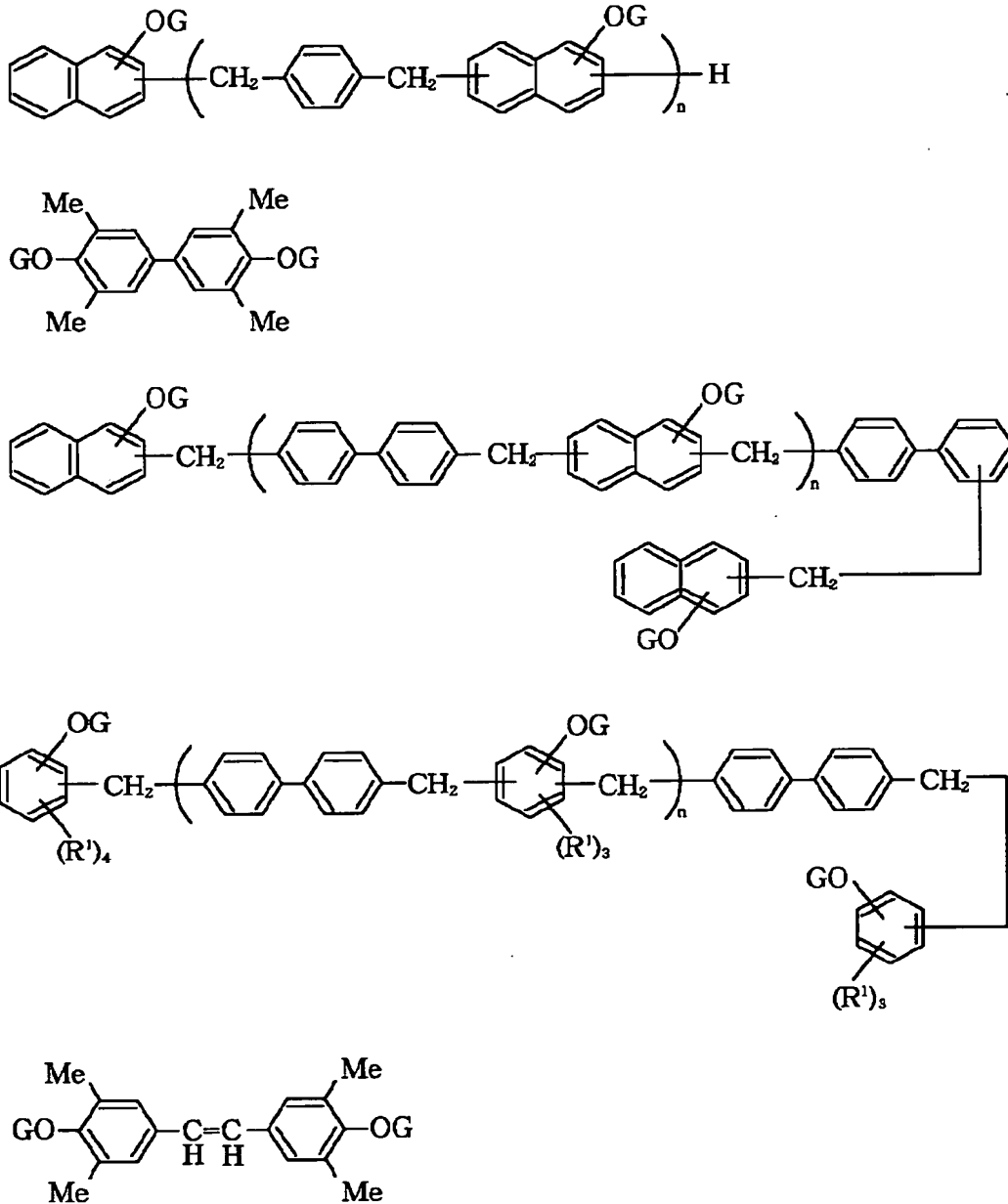
【0010】本発明で使用するエポキシ樹脂としては、従来から公知の一分子あたり 2 個以上のエポキシ基を持ったものであればいかなるものでも使用することができる。特にビスフェノール A 型エポキシ樹脂、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾール

ノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、トリフェノールアルカン型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、フェノールアラルキル型エポキシ樹脂、シクロペンタジエン型エポキシ樹脂などが例示される。これらエポキシ樹脂の\*

\*中でも下記構造式で示される液晶構造を有するものが望ましい。

【0011】

【化1】



G = グリシジル基、Me = メチル基、n は 1 ~ 10 の整数

(上記式中、R<sup>1</sup>は互いに同一又は異種の水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基及びフェニル基から選択される基である。)

【0012】これらエポキシ樹脂中の全塩素含有量は 1500 ppm 以下、特に 1000 ppm 以下であることが望ましい。また、120℃で 50% エポキシ樹脂濃度における 20 時間での抽出水塩素が 5 ppm 以下である

ことが好ましい。全塩素含有量が 1500 ppm を超えたり、抽出水塩素が 5 ppm を超えると、半導体の耐湿信頼性が低下する場合がある。

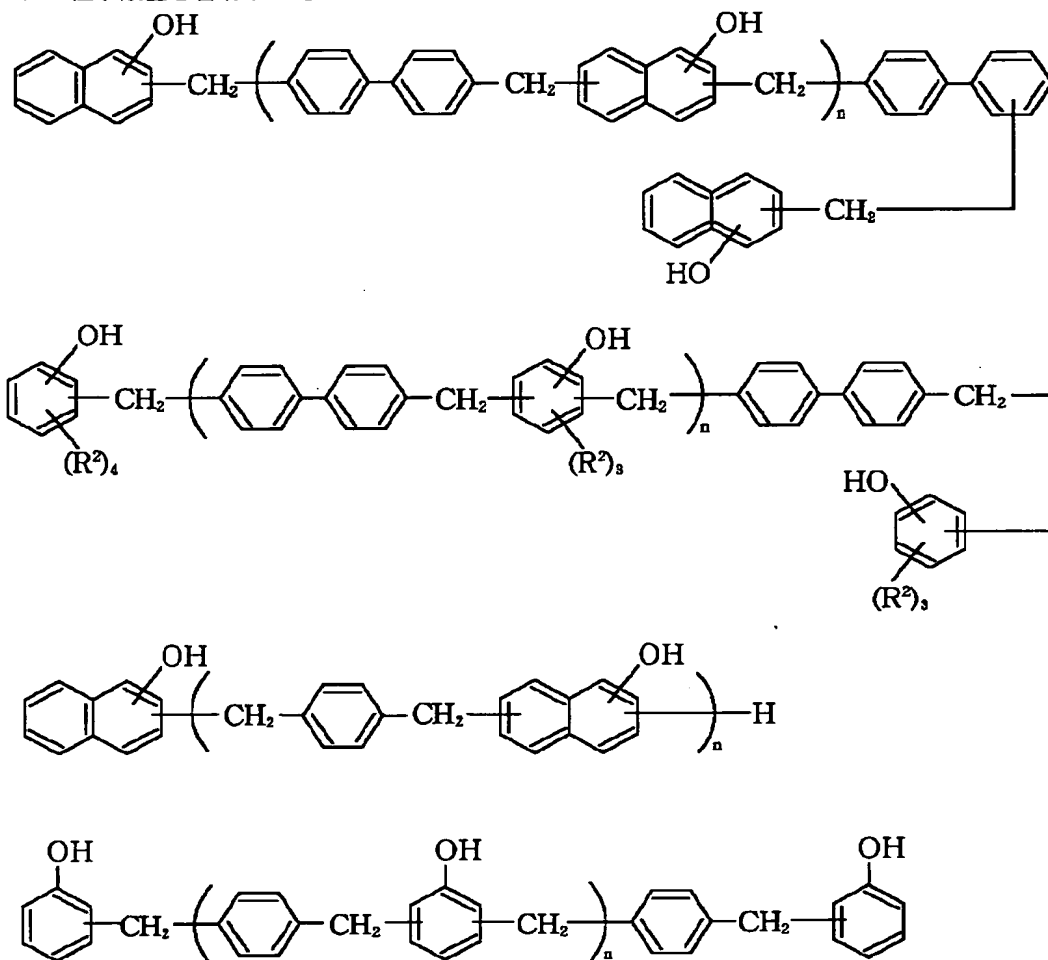
【0013】本発明の硬化剤としては、1 分子中にフェノール性の水酸基が 2 個以上あれば如何なるものでも使用可能である。具体的には、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂等のノボラック型フェノ

ール樹脂、フェノールアルキル樹脂、トリフェノールアルカン型樹脂、ナフタレン型フェノール樹脂、ビフェニル型樹脂、シクロペンタジエン型フェノール樹脂や下記構造のフェノール性水酸基を含有するものなどが例示さ\*

\*れる。

【0014】

【化2】



(上記式中、 $R^2$ は互いに同一又は異種の水素原子、炭素数1～4のアルキル基及びフェニル基から選択される基である。)

【0015】上記フェノール樹脂もエポキシ樹脂同様、120℃で抽出される塩素イオンやナトリウムイオンなどはいずれも10ppm以下、特に5ppm以下であることが望ましい。

【0016】エポキシ樹脂とフェノール樹脂との使用割合は、エポキシ基1モルに対してフェノール性水酸基が0.5～1.6モル、特に0.6～1.4モルとなる範囲が好適である。フェノール性水酸基の割合が0.5モル未満では、水酸基が不足してエポキシ基の単独重合の割合が多くなり、ガラス転移温度が低くなる場合があり、1.6モルを超えるとフェノール性水酸基の比率が高くなり、反応性が低下する他、架橋密度が低く十分な強度が得られないものとなる場合がある。

【0017】更に、本発明では、硬化促進剤を配合する

$n$ は0～10の整数

ことが好ましい。硬化促進剤としては、トリフェニルホスフィンや、2, 6-位、2, 4, 6-位がメトキシ基で置換されたトリフェニルホスフィンの誘導体或いはこれらの4級塩などの有機リン系化合物、イミダゾール誘導体、1, 8-ジアザビシクロ(5. 4. 0)ウンデセン-7等のシクロアミジン系誘導体などを使用することができる。硬化促進剤の配合量は、エポキシ樹脂とフェノール樹脂の合計量100重量部に対して0.01～10重量部が好ましい。

【0018】本発明組成物は、無機質充填剤として球状クリストバライトを配合することを特徴とするものである。

【0019】ここで、上記球状クリストバライトは、従来公知の製法で製造された球状溶融シリカのクリストバライト化により得ることができるが、原料としての球状溶融シリカとしては、平均粒径が0.3～50 $\mu$ m、特に0.3～30 $\mu$ m、とりわけ0.3～20 $\mu$ mで最大

粒径が $150\mu\text{m}$ 以下、特に $100\mu\text{m}$ 以下、とりわけ $75\mu\text{m}$ 以下のものが望ましい。平均粒径が $50\mu\text{m}$ を超えると、粒径が粗くなりすぎてゲートつまりや金型摩耗を引き起こしやすくなる場合があり、平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ 未満では粒子が細くなりすぎて多量に充填することができなくなる場合がある。また、最大粒径が $150\mu\text{m}$ を超えると、粒径が粗くなりすぎてゲートつまりや金型摩耗を引き起こしやすくなる場合がある。なお、ここでの平均粒径は、例えばレーザー光回折法による粒度分布測定における重量平均（メジアン径）等として求めることができる。

【0020】また、球状熔融シリカは、不純物として含まれるアルカリ金属やハロゲン元素量がそれぞれ $20\text{ppm}$ 以下、特に $10\text{ppm}$ 以下であることが好ましい。いずれかの不純物量が $20\text{ppm}$ を超える球状熔融シリカをクリストバライト化したものを充填剤として使用すると、耐湿性低下が生ずる場合がある。なお、上記アルカリ金属やハロゲン元素量は、具体的には、試料 $10\text{g}$ を $250\text{cc}$ のプラスチック容器に入れ、純水 $100\text{cc}$ を加え、 $30$ 分間振とう後、 $95^\circ\text{C}$ の恒温槽で $20$ 時間放置し、次いで試料を分離した後の抽出水のアルカリ金属やハロゲン元素量をイオンクロマトグラフィーにより測定した値である。

【0021】更に、本発明では、原料の球状熔融シリカがその形状及び粒度分布を維持したまま熔融状態からクリストバライトに結晶化されるので、特に不純物としてウランやトリウムの含有量が非常に少ないもの、具体的にウラン、トリウム含有量が $1\text{ppb}$ 以下である高純度合成球状シリカを原料として用いると、メモリーデバイス用に好適な球状クリストバライトを得ることができる。

【0022】本発明では、このような球状熔融シリカを $1200\sim 1600^\circ\text{C}$ 、特に $1200\sim 1500^\circ\text{C}$ の高温で $10\sim 50$ 時間、特に $15\sim 40$ 時間加熱し、結晶を確実に成長させた後、冷却することでクリストバライト化させることができる。なおこの場合、昇温速度は室温から所定の温度まで $10\sim 100^\circ\text{C}/\text{分}$ が好適である。加熱温度が $1200^\circ\text{C}$ 未満では完全にクリストバライト化するのに長時間要する場合があり、 $1500^\circ\text{C}$ を超えると球状熔融シリカ粒子同士が融着し、元の粒度分布を維持しなくなる場合がある。また、加熱時間が $10$ 時間未満では結晶化が不十分となる場合があり、 $50$ 時間を超えると結晶化には十分な時間であるが、高温で長時間維持しなければならないことからコストアップを招いてしまう場合がある。

【0023】このようにして得られる球状クリストバライトは、原料の熔融シリカの形状、粒度分布をそのまま維持し得ることから、エポキシ樹脂組成物への充填量も高くすることができ、かつ熱伝導率も向上させることができる。更に、形状が球状であるため、高充填しても金

型摩耗も非常に少ない組成物が得られる特徴がある。

【0024】上記球状クリストバライトは、予めシランカップリング剤、チタン系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤などのカップリング剤で表面を処理して使用してもよい。

【0025】本発明のエポキシ樹脂組成物には、無機質充填剤として上記の球状クリストバライト以外の無機質充填剤を配合することができる。他の無機質充填剤としては、例えばボールミルなどで粉碎した熔融シリカ、火炎熔融することで得られる球状シリカ、ゾルゲル法などで製造される球状シリカ、結晶シリカ、アルミナ、ボロンナイトライド、チッ化アルミ、チッ化珪素、マグネシア、マグネシウムシリケートなどが挙げられる。なお、エポキシ樹脂組成物に無機質充填剤を高充填するには、使用する充填剤全てが球状のものであることが望ましい。他の無機質充填剤としては、特に球状熔融シリカが好適である。

【0026】本発明においては、上記球状クリストバライトを全充填剤の $1\sim 90$ 重量%、望ましくは $5\sim 70$ 重量%、より望ましくは $10\sim 50$ 重量%の範囲で配合する。球状クリストバライトの配合量が $1$ 重量%未満では、配合効果が発揮されず、本発明の目的を達成することができない。また、配合量が $90$ 重量%より多くなると、膨張係数が非常に大きくなり半導体素子に対する応力が大きくなる。特に、クリストバライトは $200^\circ\text{C}$ 以上で膨張係数が大きくなるため、クリストバライトの充填量が $90$ 重量%より多いと、応力等の問題で不具合が発生する可能性が高い。

【0027】無機質充填剤の総使用量は、通常、エポキシ樹脂と硬化剤の総量 $100$ 重量部に対して $300\sim 1200$ 重量部、特に $500\sim 1000$ 重量部、とりわけ $600\sim 1000$ 重量部が好適である。無機質充填剤の使用量が $300$ 重量部未満では、膨張係数を十分に下げることができない上、吸水率も多くなり半田リフローの際の温度でパッケージにクラックが入ってしまう場合があり、 $1200$ 重量部を超えると粘度が高くなりすぎて成形できなくなってしまう場合がある。

【0028】更に、本発明組成物には、チクソ性付与のためアエロジルなどの超微粒子シリカを添加することもできる。この種の超微粒子シリカを使用する場合は、予めボールミル等の混合装置を用いて他の充填剤と均一に混合した後、使用したほうがよい。

【0029】また、本発明の組成物には、従来から公知のシリコーンゴムやゲルなどの粉末、シリコーン変性エポキシ樹脂やシリコーン変性フェノール樹脂、メタクリル酸メチルブタジエンスチレンよりなる熱可塑性樹脂などを低応力化剤として添加してもよい。なお、これら樹脂の添加量は、本発明の効果を妨げない範囲で通常量とすることができる。

【0030】また更に、任意成分としてシランカップリ

ング剤、チタン系カシプリング剤、アルミニウム系カップリング剤などのカップリング剤やカーボンブラックなどの着色剤、ノニオン系界面活性剤、フッ素系界面活性剤、シリコーンオイルなどの濡れ向上剤や消泡剤なども場合によっては添加することができる。なお、これら任意成分の添加量は、本発明の効果を妨げない範囲で通常量とすることができる。

【0031】本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、上記した諸原料を高速混合機などを用い、均一に混合した後、二本ロールや連続混練装置などで十分混練することにより製造することができる。混練温度としては、50～110℃が望ましい。混練後は、薄くシート化し、冷却、粉碎することでエポキシ樹脂組成物を製造することができる。

#### 【0032】

【発明の効果】本発明の半導体封止用エポキシ樹脂組成物は、無機質充填剤として球状クリストバライトを特定量配合することにより、無機質充填剤を高充填化し得、かつ膨張係数の制御を簡単に行うこともでき、高熱伝導\*

\*化及び低吸水性で高品質の硬化物を与える。従って、本発明のエポキシ樹脂組成物は、半導体封止材料として最先端デバイス用としても好適に利用することができる。

#### 【0033】

【実施例】以下、調製例、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に制限されるものではない。なお、下記の例において%はいずれも重量%、部は重量部を示す。

【0034】〔調製例1〕表1に示す粒度分布を有する球状熔融シリカを1500℃で20時間放置した後、毎時100℃の割合で温度を下げ、25℃まで冷却した。

【0035】得られた球状クリストバライトを電子顕微鏡で測定し、形状を確認した後、粒度分布及びX線回折により結晶構造を確認した。粒度分布を表1に、X線回折を図1に、並びに、得られた球状クリストバライトと原料の球状熔融シリカの電子顕微鏡写真（倍率はいずれも1000倍）を図2に示す。

#### 【0036】

【表1】

		原料球状熔融シリカ	本発明品 (球状クリストバライト)
粒度分布 (累積重量%)	96 $\mu\text{m}$ 以下	100.0	100.0
	64 $\mu\text{m}$ 以下	95.8	96.7
	48 $\mu\text{m}$ 以下	88.4	90.8
	24 $\mu\text{m}$ 以下	60.1	62.2
	12 $\mu\text{m}$ 以下	39.9	42.9
	6 $\mu\text{m}$ 以下	22.5	25.8
	3 $\mu\text{m}$ 以下	13.3	14.2
	1.5 $\mu\text{m}$ 以下	4.4	5.8
平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )		17.3	16.2
真比重		2.2	2.36
比表面積 ( $\text{m}^2/\text{g}$ )		0.9	1.0
抽出不純物 (ppm)	アルカリ金属イオン	9	8
	ハロゲンイオン	12	10

【0037】〔調製例2～6〕調製例1で使用した球状熔融シリカを使用し、表3に示す製造条件でクリストバライト化を行った。得られたシリカの物性を表3に併記する。

【0038】〔調製例7〕原料として表2に示す破碎熔融シリカを使用し、表3に示す製造条件でクリストバライト化を行った。得られたシリカの物性を表3に併記する。

#### 【0039】

【表2】

		破碎溶融シリカ
粒度分布 (累積重量%)	96 $\mu\text{m}$ 以下	100.0
	64 $\mu\text{m}$ 以下	95.8
	48 $\mu\text{m}$ 以下	88.4
	24 $\mu\text{m}$ 以下	60.1
	12 $\mu\text{m}$ 以下	39.9
	6 $\mu\text{m}$ 以下	22.5
	3 $\mu\text{m}$ 以下	13.3
	1.5 $\mu\text{m}$ 以下	4.4
平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )		17.3
真比重		2.2
比表面積 ( $\text{m}^2/\text{g}$ )		0.9

\*【0040】  
【表3】

10

\*

		調製例					
		2	3	4	5	6	7
最高温度 (°C)		1300	1800	1500	1000	800	1500
加熱時間 (時間)		40	15	20	40	50	20
真比重		2.33	2.35	2.34	2.32	2.20	2.31
比表面積 ( $\text{m}^2/\text{g}$ )		1.0	0.9	1.0	1.0	1.0	1.1
X線回折		クリスト パラライト	クリスト パラライト	クリスト パラライト	クリスト パラライト	無定型	クリスト パラライト
粒度分布 (累積重量%)	96 $\mu\text{m}$ 以下	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
	64 $\mu\text{m}$ 以下	98.8	97.2	98.3	95.7	95.7	96.2
	48 $\mu\text{m}$ 以下	86.4	85.2	85.4	88.1	87.9	87.2
	24 $\mu\text{m}$ 以下	62.3	63.5	65.2	61.2	61.2	61.5
	12 $\mu\text{m}$ 以下	38.6	37.9	38.8	38.2	40.1	42.0
	6 $\mu\text{m}$ 以下	23.4	24.1	26.4	23.8	21.9	23.4
	3 $\mu\text{m}$ 以下	14.2	13.9	13.4	12.1	13.9	14.2
	1.5 $\mu\text{m}$ 以下	5.2	4.9	5.5	4.9	4.0	4.4
形状		球状	球状	球状	球状	球状	破碎状

【0041】 [実施例1～4、比較例1、2] エポキシ樹脂としてYX4000 (油化シェル製) 43.2部、硬化剤としてミレックス (三井化学製) 51.8部、臭素化エポキシ樹脂としてBREN-S (日本化薬製) 5部、表4に示す種類及び量の無機質充填剤、三酸化アンチモン5部、着色剤としてカーボンブラック1.5部、シランカップリング剤としてKBM403 (信越化学製) 1.0部、離型剤としてカルナバワックス1.2

部、触媒としてトリフェニルホスフィン (北興化学製) 0.8部を秤取り、高速混合装置で10分間混合撹拌した後、連続押し出し機で混練することでエポキシ樹脂組成物を得た。

【0042】 得られエポキシ樹脂組成物につき下記の諸物性を測定した。結果を表4、5に示す。

スパイラルフロー：成形温度175℃、成形温度70 kg/cm<sup>2</sup>でトランスファー成形することでスパイラル



フローを測定した。

ゲル化時間：175℃の熱板でエポキシ樹脂組成物がゲルになるまでの時間を測定した。

溶融粘度：高化式フローテスターを用い、10kgの加圧下、直径1mmのノズルを用い、温度175℃で粘度を測定した。

ガラス転移温度、膨張係数：175℃、70kg/cm<sup>2</sup>、成形時間2分の条件で4×4×15mmの試験片を成形し、180℃で4時間ポストキュアしたものを用い、ディラトメーターにより5℃/分で昇温させることにより測定した。

吸水率：175℃、70kg/cm<sup>2</sup>、成形時間2分の条件で直径50×3mmの円盤を成形し、180℃で4時間ポストキュアしたものを85℃/85%RH雰囲気\*

\*気中に72時間放置し、吸水率を測定した。

吸湿後の耐クラック性：銅フレームの100ピンQFP用リードフレーム（形状14×20×2.7mm）に6.5×6.5mmの大きさのチップを搭載し、実施例1, 2, 4、比較例1, 2で得たエポキシ樹脂組成物で封止した。封止条件はいずれも175℃、成形条件70kg/cm<sup>2</sup>、成形時間2分で行い、ポストキュアは180℃で4時間行った。それぞれの樹脂組成物で封止したパッケージ5個を85℃/85%RH雰囲気中に72時間放置、吸湿させた後、ピーク温度240℃のIRリフローを3回通し、耐ハンダリフロー性を評価した。

【0043】

【表4】

		実施例				比較例	
		1	2	3	4	1	2
無機質充填剤	種類	調製例1 (球状のクリストパ ライト)	調製例2 (球状のクリストパ ライト)	調製例3 (球状のクリストパ ライト)	調製例5 (球状のクリストパ ライト)	調製例6 (無定形シリカ)	調製例7 (球状のクリストパ ライト)
	配合量 (部)	100	225	125	530	225	225
	種類	調製例1 の原料球状溶融シリカ	調製例1 の原料球状溶融シリカ	球状アルミナ	調製例1 の原料球状溶融シリカ	調製例1 の原料球状溶融シリカ	調製例1 の原料球状溶融シリカ
	配合量 (部)	800	675	775	370	675	675
スパイラルフロー (cm)		115	109	95	120	104	38
ゲル化時間 (秒)		25	24	25	23	25	20
溶融粘度 (ボイズ)		120	105	150	124	130	720
成形硬度		62	65	72	65	61	58
ガラス転移温度 (℃)		120	124	119	121	125	123
膨張係数 (ppm)		10	12	17	17	10	12
吸水率 (%)		0.08	0.08	0.06	0.07	0.08	0.09

【0044】

※ ※【表5】

		85℃/85%RH/72時間放置後IRリフロー	
		内部クラック	外部クラック
実施例	1	0/10	0/10
	2	0/10	0/10
	4	0/10	0/10
比較例	1	5/10	0/10
	2	粘度が高すぎてダイパッドシフトが起こり評価できず。	

【図面の簡単な説明】

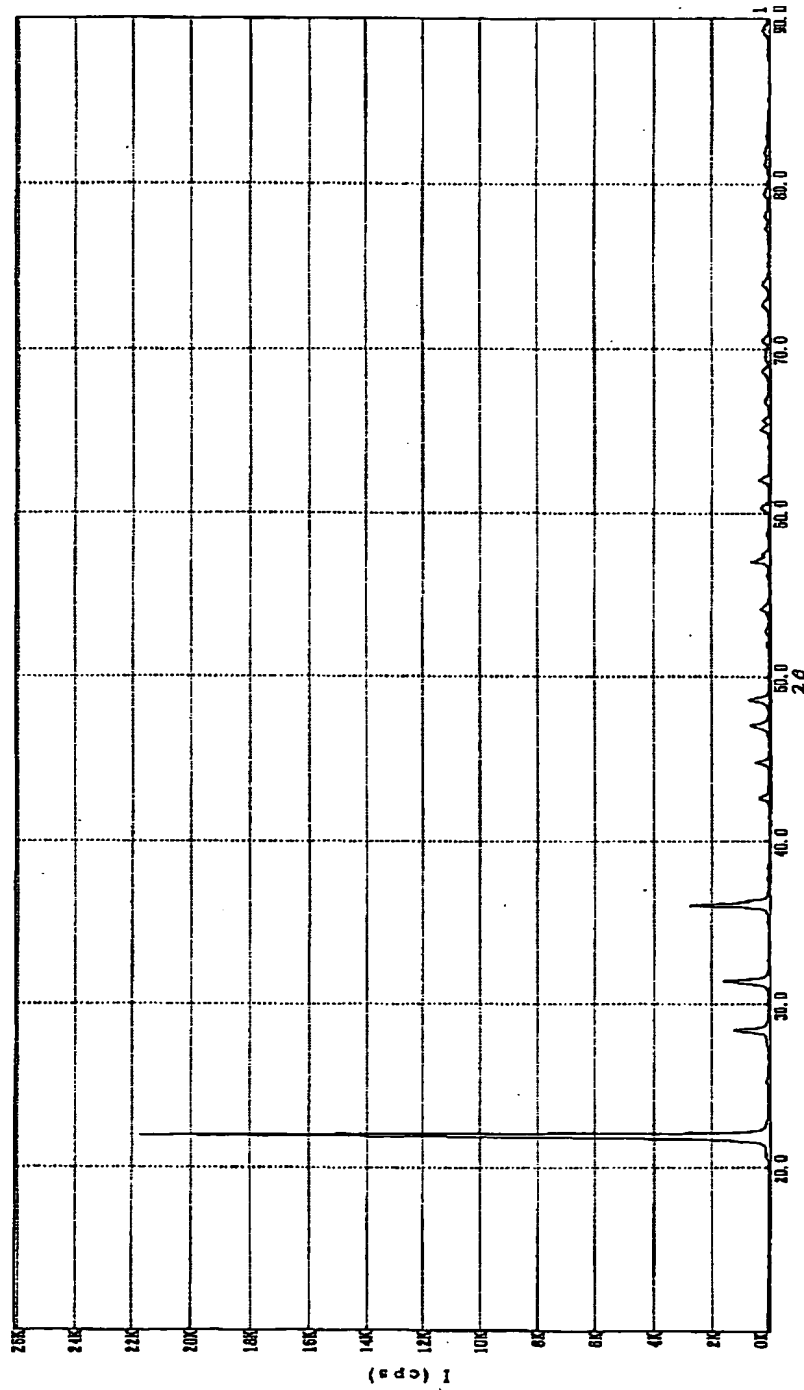
線回折を示すグラフである。

【図1】調製例1で得られた球状クリストパライトのX 50 【図2】(A)は調製例1で得られた球状クリストパ

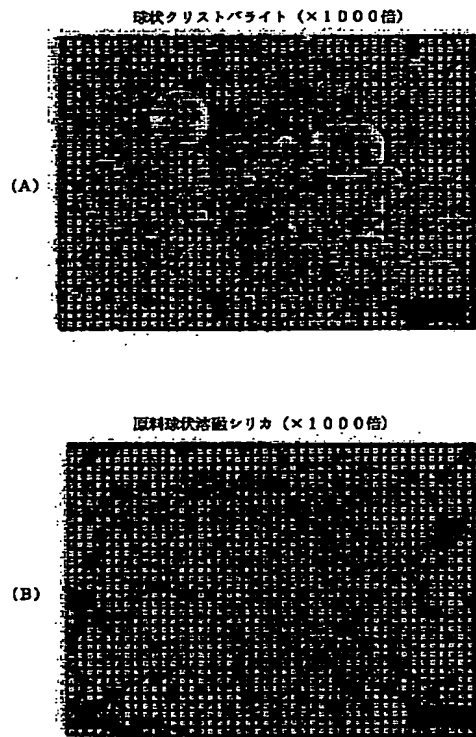
イト及び(B)は原料の球状熔融シリカの電子顕微鏡写

真(倍率はそれぞれ1000倍)である。

【図1】



【図 2】



## 【手続補正書】

【提出日】平成11年4月23日

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

【補正方法】変更

【補正内容】

【0013】本発明の硬化剤としては、1分子中にフェノール性の水酸基を2個以上有するフェノール樹脂であれば如何なるものでも使用可能である。具体的には、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂等のノボラック型フェノール樹脂、フェノールアラキル樹脂、トリフェノールアルカン型樹脂、ナフタレン型フェノール樹脂、ビフェニル型樹脂、シクロペンタジエン型フェノール樹脂や下記構造のフェノール性水酸基を含有するものなどが例示される。

## 【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0042

【補正方法】変更

【補正内容】

【0042】得られエポキシ樹脂組成物につき下記の諸物性を測定した。結果を表4、5に示す。

スパイラルフロー：成形温度175℃、成形温度70k

gf/cm<sup>2</sup>でトランスファー成形することでスパイラルフローを測定した。

ゲル化時間：175℃の熱板でエポキシ樹脂組成物がゲルになるまでの時間を測定した。

熔融粘度：高化式フローテスターを用い、10kgの加圧下、直径1mmのノズルを用い、温度175℃で粘度を測定した。

ガラス転移温度、膨張係数：175℃、70kgf/cm<sup>2</sup>、成形時間2分の条件で4×4×15mmの試験片を成形し、180℃で4時間ポストキュアしたものを、ディラトメーターにより5℃/分で昇温させることにより測定した。

吸水率：175℃、70kgf/cm<sup>2</sup>、成形時間2分の条件で直径50×3mmの円盤を成形し、180℃で4時間ポストキュアしたものを85℃/85%RH雰囲気中に72時間放置し、吸水率を測定した。

吸湿後の耐クラック性：銅フレームの100ピンQFP用リードフレーム（形状14×20×2.7mm）に6.5×6.5mmの大きさのチップを搭載し、実施例1、2、比較例1、2で得たエポキシ樹脂組成物で封止した。封止条件はいずれも175℃、成形条件70kgf/cm<sup>2</sup>、成形時間2分で行い、ポストキュアは180℃で4時間行った。それぞれの樹脂組成物で封

止したパッケージ5個を85℃/85%RH雰囲気中に  
72時間放置、吸湿させた後、ピーク温度240℃のI

Rリフローを3回通し、耐ハンダリフロー性を評価し  
た。

---

フロントページの続き

(72)発明者 塩原 利夫  
群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内

(72)発明者 青木 貴之  
群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内  
(72)発明者 長田 将一  
群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10  
信越化学工業株式会社シリコン電子材料  
技術研究所内